

千葉県北部における酸性雨の地域的特性について（８）

——2001年度 観測結果——

中 村 圭 三 ・ 立 澤 誘 一

1. まえがき

東京の東側に位置し、南西部の京葉工業地帯と北東部の鹿島臨海工業地域に挟まれた千葉県北部地域における、一降水ごとの酸性雨に関して、1993年4月から観測を継続している。1993年には、佐倉市に位置する本学のみで観測していたが、1994年5月からは千葉県北部地域に11名の環境モニターを配置し、また、1995年10月からはさらに11名の環境モニターを増員して、当地域における酸性雨の地域的特性について研究してきた（中村、1993、1994、1995、1996、1997、1998、1999、2000、2001、2002）。今回は、2001年度の観測結果について報告する。

2. 観測方法

千葉県内20地点（図1）において、毎日一定の時刻または降水直前に、ポリプロピレン製5リットルビーカーを設置し、酸性雨を一降水ごとに採水した。採水した酸性雨は、50mlポリビンに詰め、直ちに本研究所に郵送してもらい、pHはメトラー製pHメーター（MP-230）、ECは、東亜電波工業製電気伝導度計（CM-60S）で測定した。また、その成分については、島津製作所製イオンクロマトグラフ（LC-10A）によって陽イオン（ Na^+ 、 NH_4^+ 、

K^+ 、 Mg^{2+} 、 Ca^{2+} ）および陰イオン（ F^- 、 Cl^- 、 NO_2^- 、 Br^- 、 NO_3^- 、 SO_4^{2-} ）の11成分について分析した。本研究では、酸性雨の成分分析に関しては、イオンバランスのとれたサンプルのみを研究対象とした。

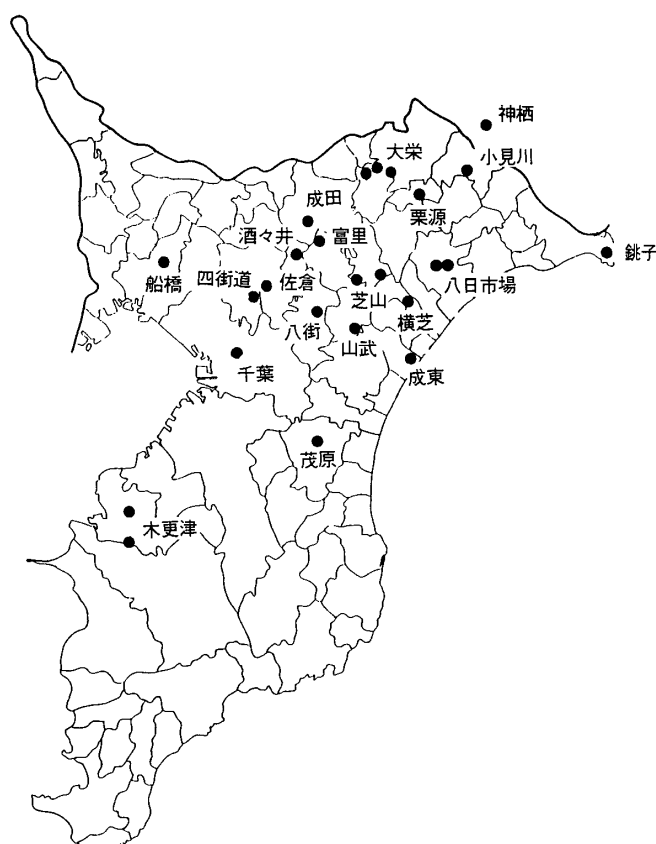


図1 酸性雨観測地域
●：観測地点

3. 酸性雨の観測結果

3.1 気象概況

2001年4月から2002年3月までの1年間における関東地方の天候の特徴としては、春期の少雨、夏期の高温・多照・少雨、秋期の多照、および冬期の多雨・寡照、平年並みの気温などがあげられる。図2に、2001年度の佐倉における降水採水日の降水量の時間的推移を示す。一降水で100mmを超える観測事例は、9月・10月にいずれも1例ずつあった。これらのうち9月は台風15号、10月の豪雨は低気圧の南岸通過によるものであった。

3.2 pH

3.2.1 pHの時間的推移

2001年度における千葉県北部地域のpHの時間的推移を知るために、佐倉の例を図3に示す。その加重平均値はpH4.46で、一般に酸性雨といわれるpH5.6以下の範囲の値が100%であった。これは2000

年度の88.1%、1999年度の83.8%と比較して急激な上昇であった。また、pH4.0以下の強い酸性雨は、2000年度と同様年間に10回観測された。1999年度には1回観測されたのみであり、1994年度に観測を開始して以来の2000年度に並ぶ最高記録であった。

3.2.2 pHの分布

千葉県北部地域におけるpH分布の場所的特性を知るために、暖候期（4～9月）および寒候期（10～3月）の加重平均値について、それぞれの分布図（図4）を作成した。暖候期平均値分布図では、栗源を除く地点ですべてpH4台の値を示す。pH4.5以下の酸性度の強い地域は、北部の神栖・銚子付近および南西部の佐倉から木更津にかけての地域に分布する。

一方、寒候期のpH値は、全般的に暖候期よりも高めである。pH5.0以上の地域が神栖と千葉付近に見られ、pH4.75以下の相対的に酸性度の強い地域

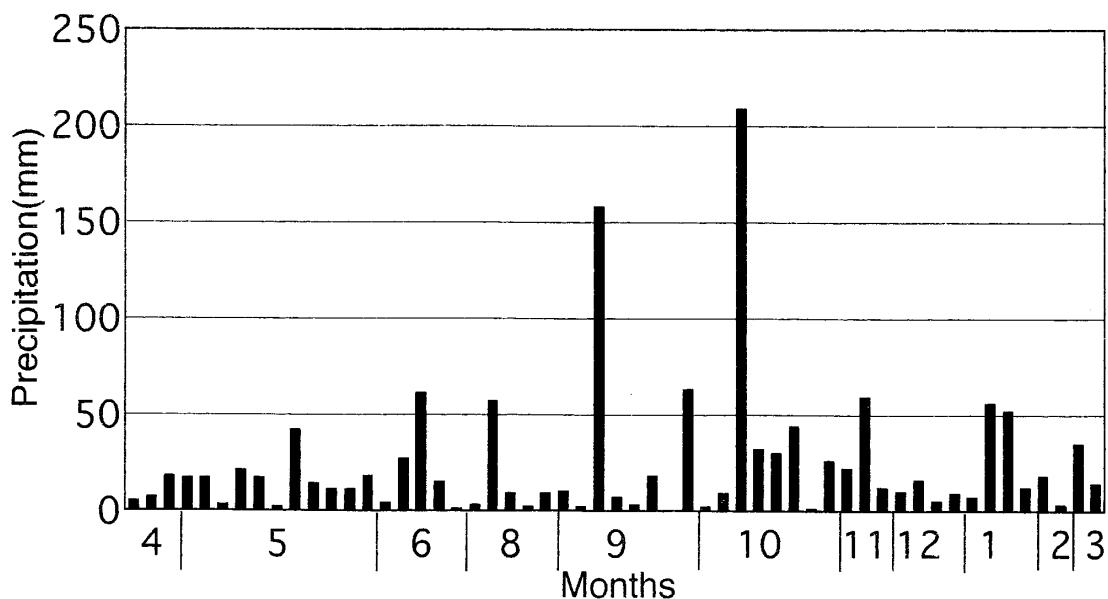


図2 2001年度の佐倉における降水量の時間的推移

千葉県北部における酸性雨の地域的特性について（８）

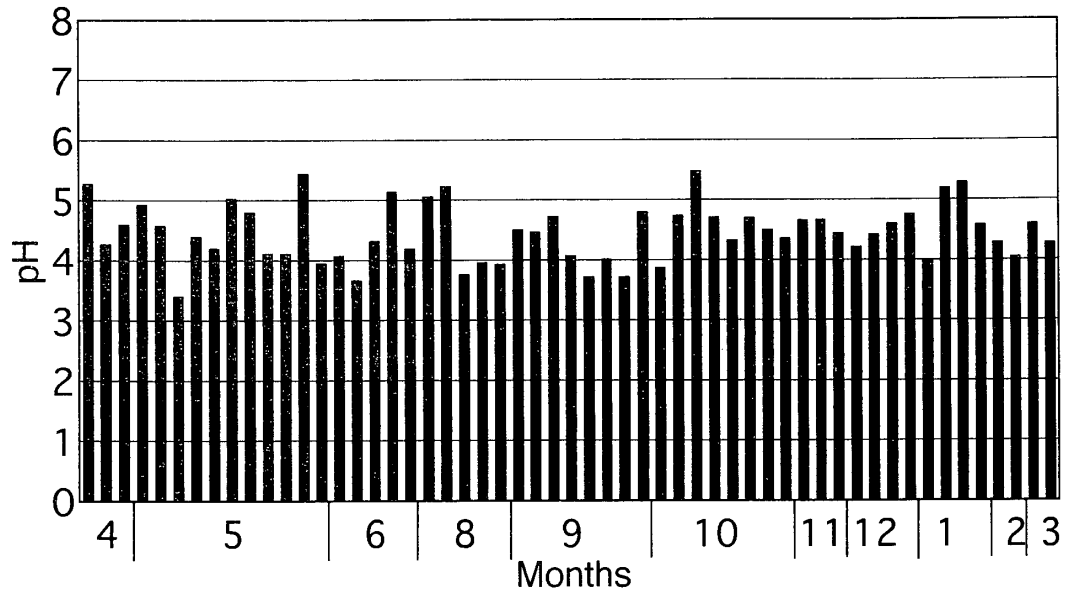


図3 2001年度の佐倉における降水のpHの時間的推移

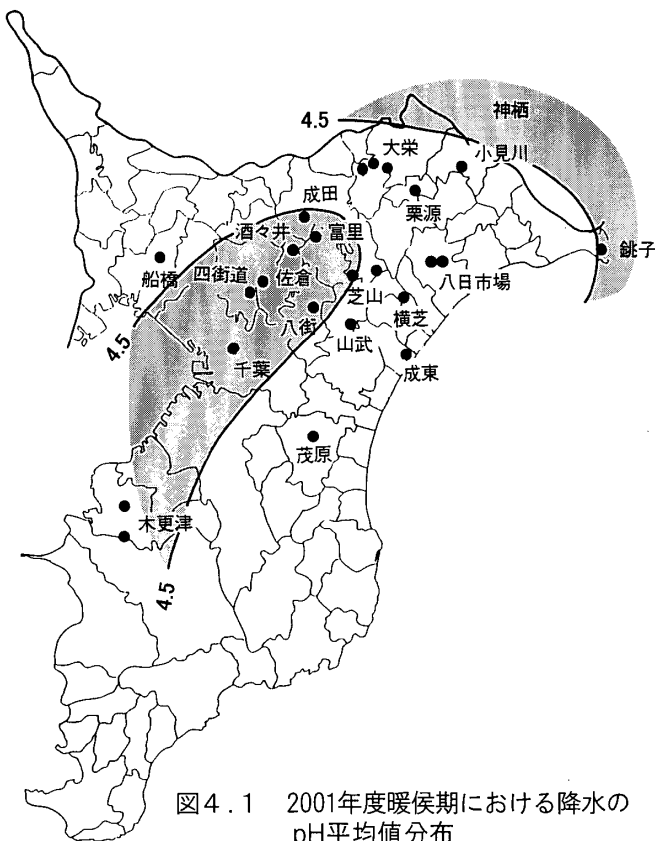


図4.1 2001年度暖侯期における降水のpH平均値分布
アミ掛けの部分は、pH4.5以下の領域を示す

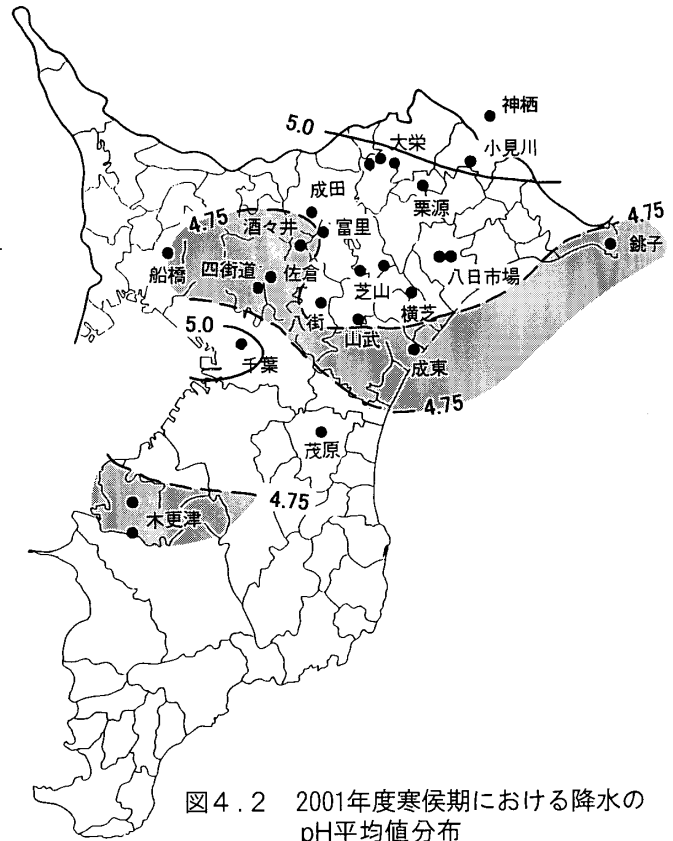


図4.2 2001年度寒侯期における降水のpH平均値分布
アミ掛けの部分は、pH4.75以下の領域を示す

は西部の船橋から成東を経て銚子に至る地域と、木更津付近に分布する。

これらの暖候期、寒候期におけるpHの分布には、地域全体として2000年度と並び例年よりも低pH化していることが認められる。

3.3 成分分析結果

3.3.1 イオン濃度組成

観測地域内における酸性雨のイオン濃度組成について、年間を通しての時間的な推移を知るために、おもな観測地点におけるイオン濃度組成 (meq/l) について検討した。

1) 佐倉 pH: 年平均值4.46

EC: 年平均值57.23 μ S/cm

年間を通じて、イオン濃度はほぼ0.6meq/lの範囲内にあり、月々の変動は比較的少ない。11月から12月のイオン濃度は、全体的に低目に推移している (図5.1)。

2) 四街道 pH: 年平均值4.28

EC: 年平均值76.3 μ S/cm

0.5meq/lを超える高濃度が、春夏秋冬にわたり、周期的に繰り返す。 H^+ のイオン濃度は、年間を通じて他の地点よりも高濃度である。また、 SO_4^{2-} が NO_3^- よりも高濃度の傾向が年間を通じて見られる (図5.2)。

3) 船橋 pH: 年平均值4.64

EC: 年平均值50.34 μ S/cm

イオン濃度は、夏季と冬季に高い傾向がある。一方、10月から12月にかけては、0.1meq/l以下の相対的に低い値の頻度が高い (図5.3)。

4) 千葉 pH: 年平均值4.52

EC: 年平均值43.6 μ S/cm

他地点と比較してサンプル数は少ないが、年

間を通じて NO_3^- よりも SO_4^{2-} の方が高濃度である傾向が認められる (図5.4)。

5) 木更津 pH: 年平均值4.55

EC: 年平均值44.35 μ S/cm

0.5meq/lを超える値は、8月と1月に出現した。京葉工業地帯に位置するため、千葉と同様に年間を通じて NO_3^- よりも SO_4^{2-} の方が高濃度である傾向が認められる (図5.5)。

6) 茂原 pH: 年平均值4.85

EC: 年平均值48.50 μ S/cm

7月、9月および1月、3月に0.5meq/lを超える値が見られる。10月から11月にかけては、0.1meq/l前後の低い値が連続して出現する (図5.6)。

7) 成東 pH: 年平均值4.73

EC: 年平均值45.12 μ S/cm

8月、9月および3月に、0.5meq/lを超える高濃度が出現する。太平洋沿岸に位置するため、海塩起源の Na^+ 、 Cl^- などが高濃度である (図5.7)。

8) 八日市場 pH: 年平均值4.77

EC: 年平均值42.94 μ S/cm

全体的な傾向は、成東に類似している。0.5meq/lを超える高濃度の値は、成東同様の8月、9月および3月の他に、5月にも出現している (図5.8)。

9) 銚子 pH: 年平均值4.60

EC: 年平均值77.02 μ S/cm

海洋の影響が大きく、海塩起源の Na^+ 、 Cl^- などの濃度が極端に高い。そのため、イオン濃度組成は相対的に高く、0.5meq/lを超える値が頻発し、全体的に他の地点の2倍ほどの濃度になっている。この地点は鹿島臨海工業地域にも近く、年間を通じて SO_4^{2-} の濃度が、 NO_3^- の濃度を上回っている (図5.9)。

10) 神栖 pH: 年平均值4.72

千葉県北部における酸性雨の地域的特性について（８）

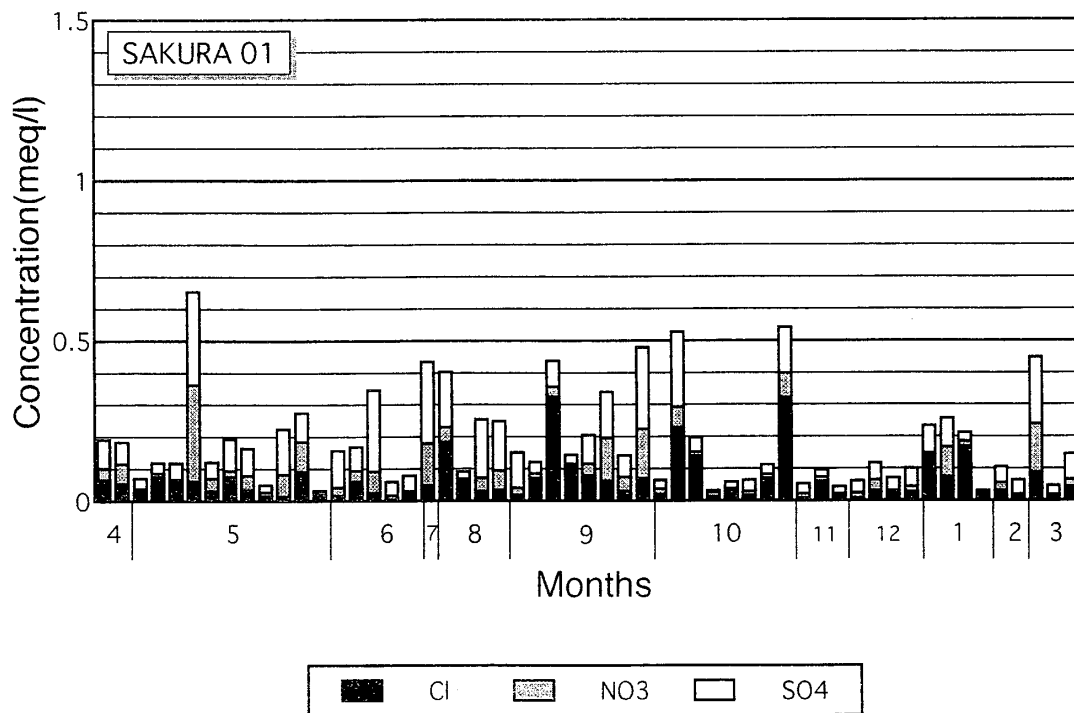
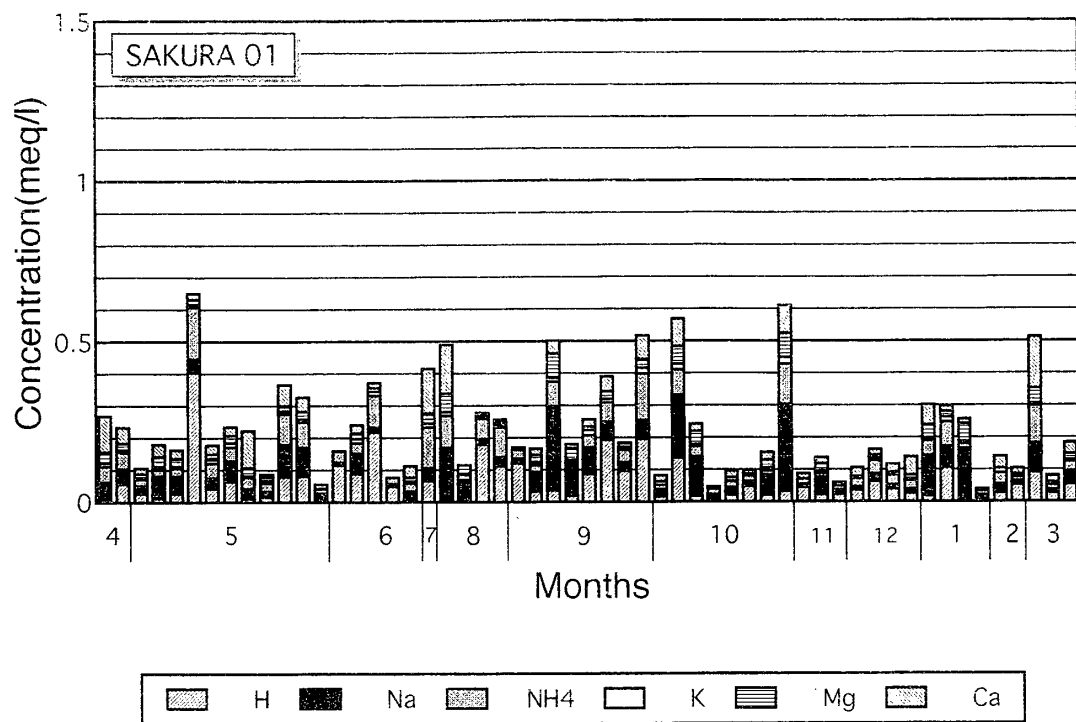


図 5. 1 2001年度の佐倉における酸性雨のイオン濃度組成
 上図：＋イオン 下図：－イオン 単位：meq/l

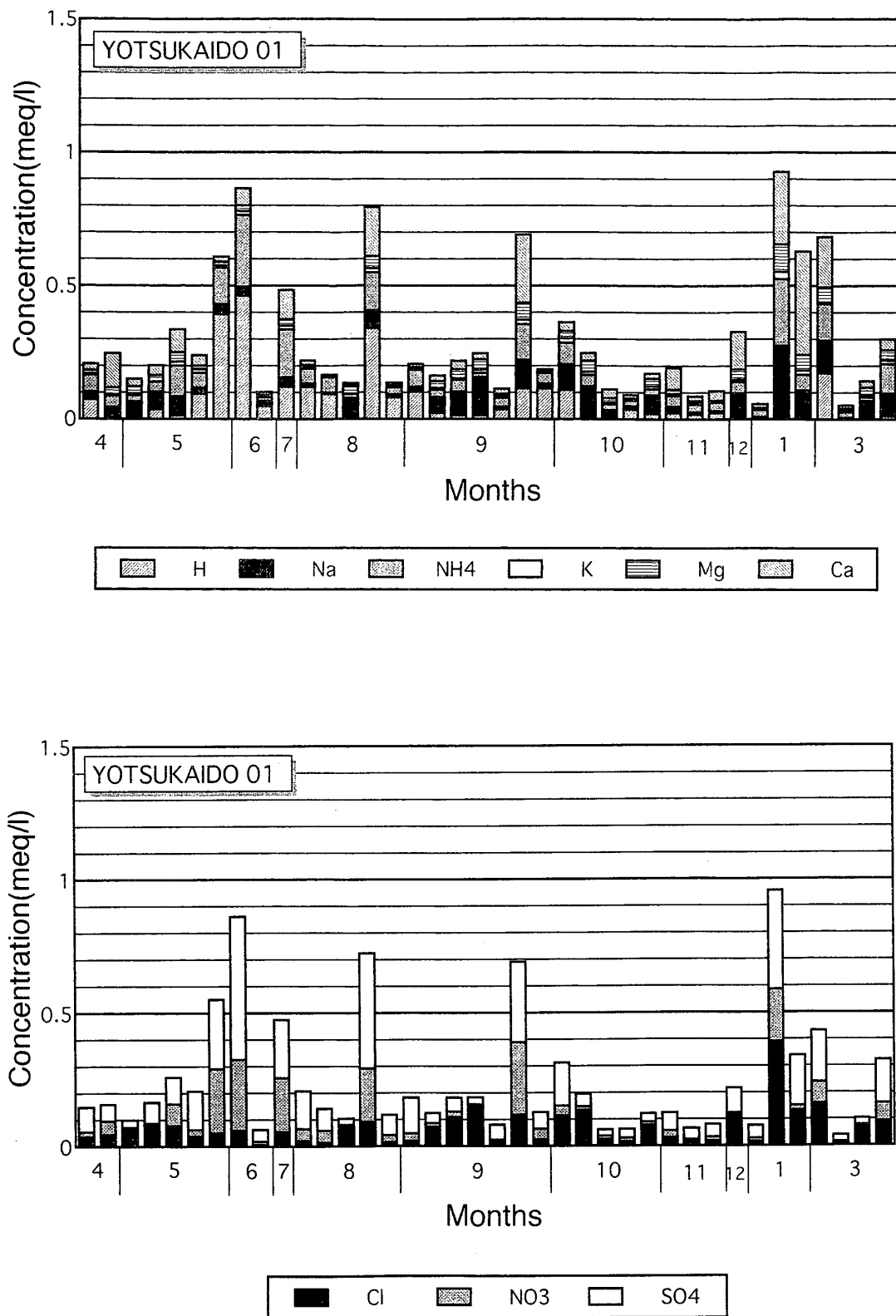


図 5.2 2001年度の四街道における酸性雨のイオン濃度組成
上図：＋イオン 下図：－イオン 単位：meq/l

千葉県北部における酸性雨の地域的特性について (8)

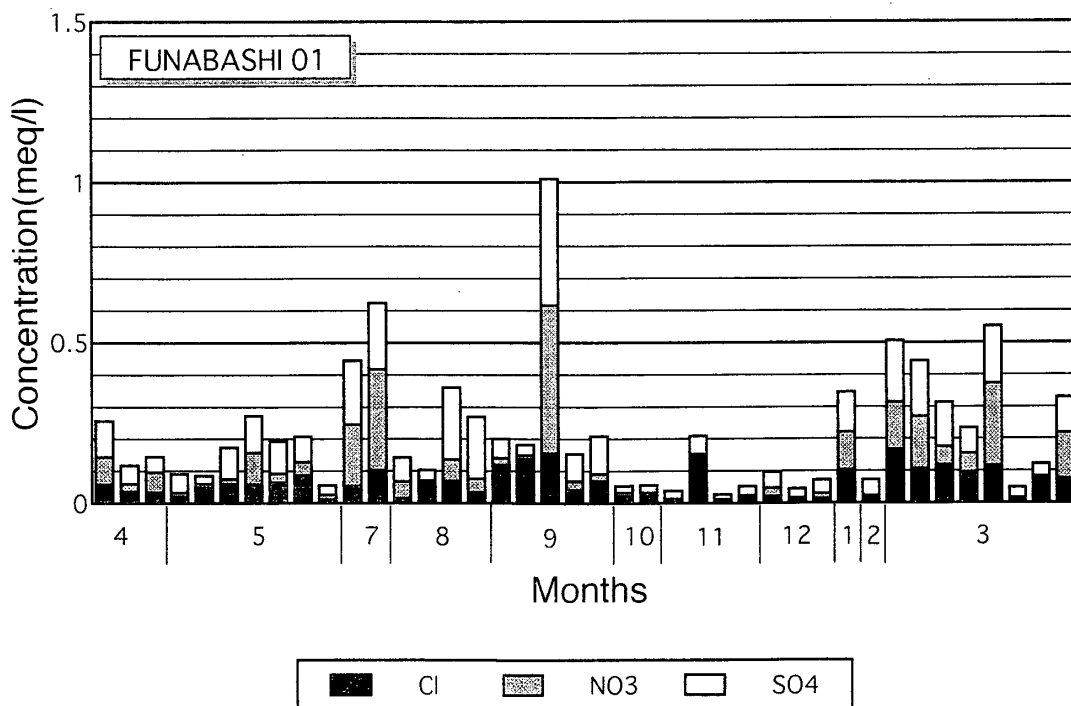
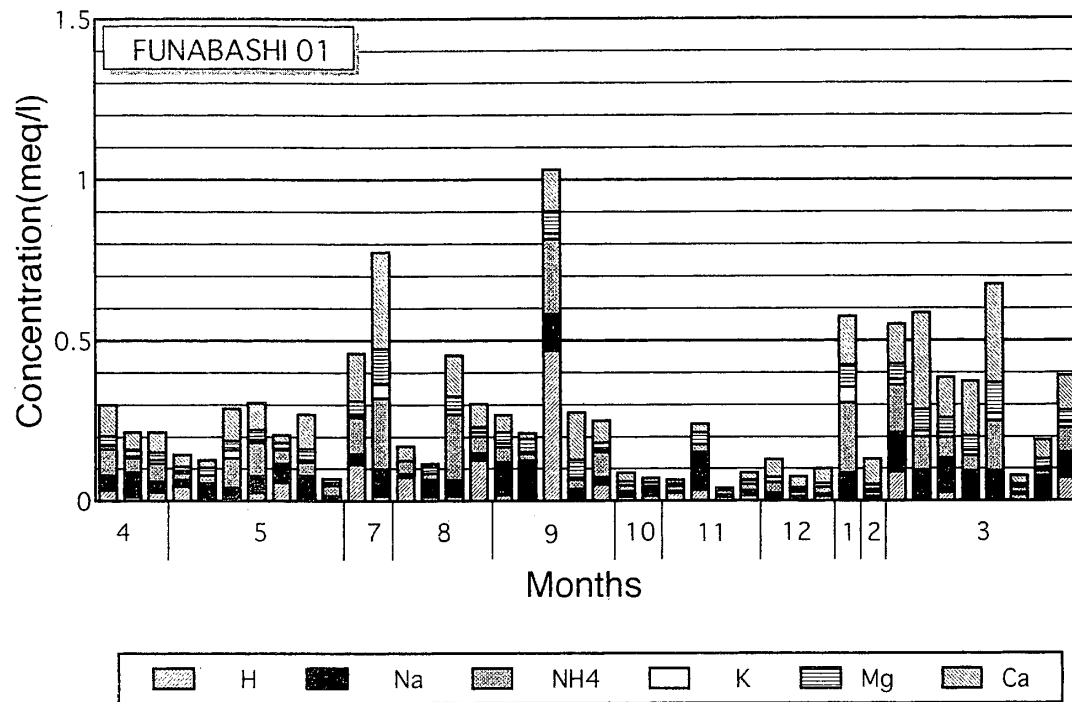


図5.3 2001年度の船橋における酸性雨のイオン濃度組成
 上図：＋イオン 下図：－イオン 単位：meq/l

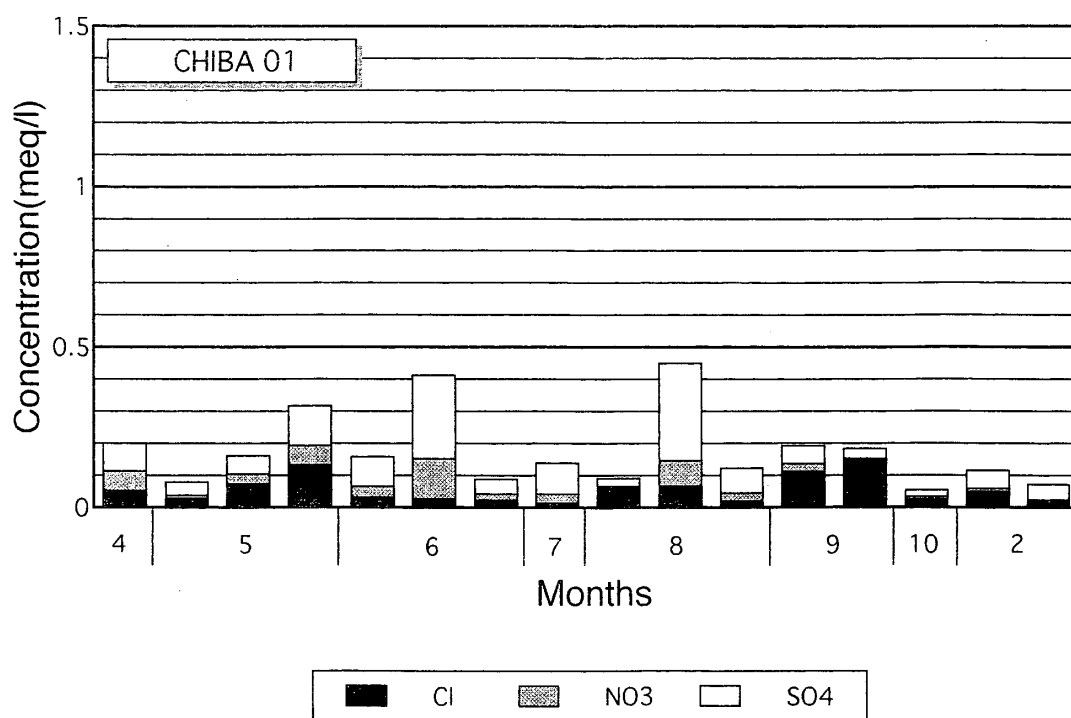
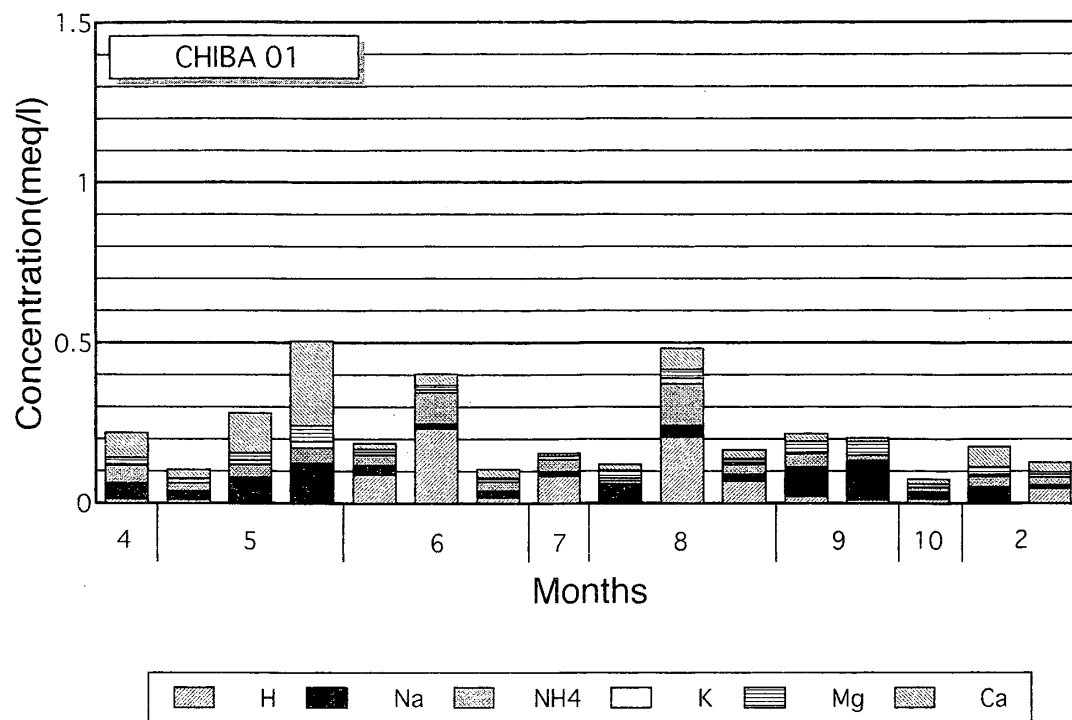


図 5.4 2001年度の千葉における酸性雨のイオン濃度組成
上図：＋イオン 下図：－イオン 単位：meq/l

千葉県北部における酸性雨の地域的特性について（８）

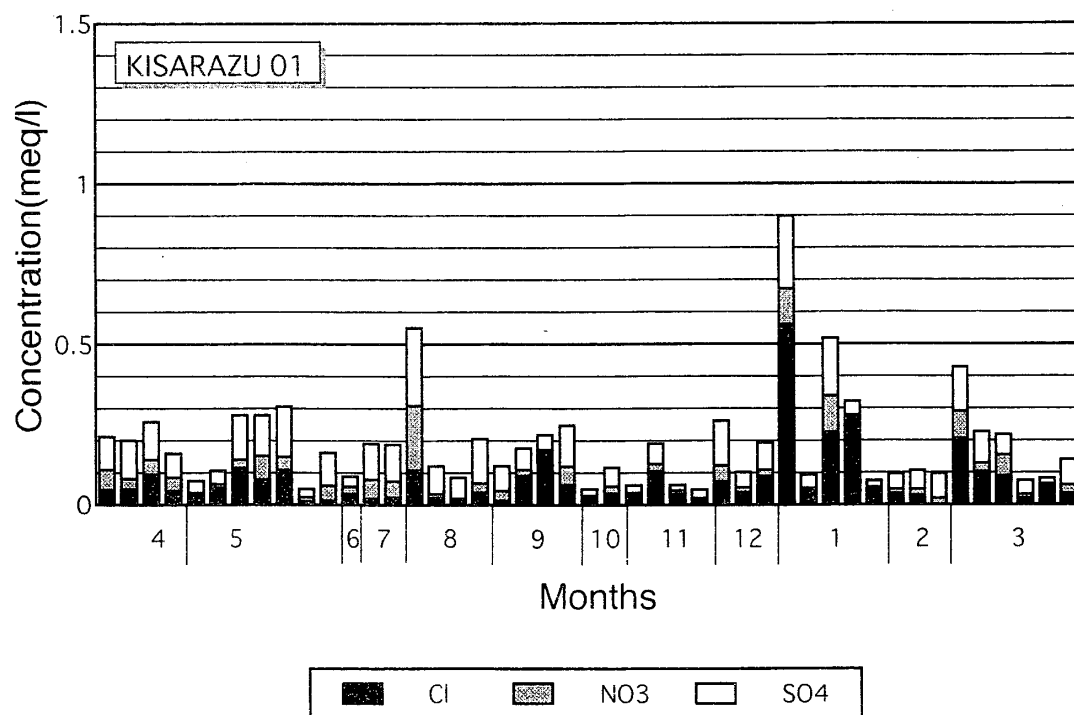
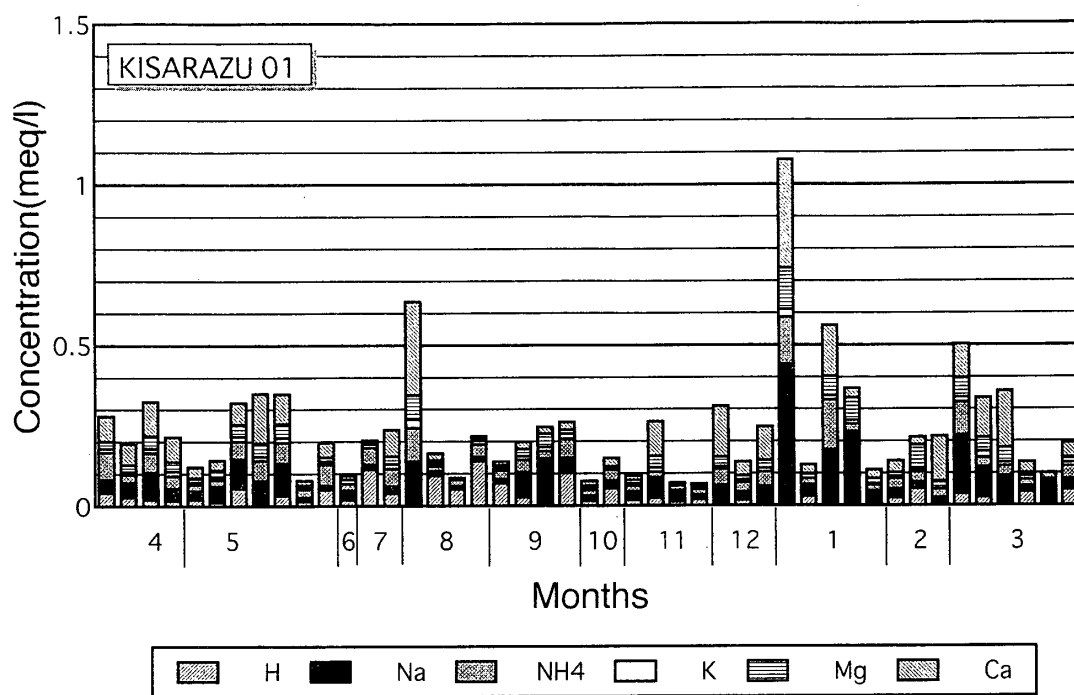


図 5.5 2001年度の木更津における酸性雨のイオン濃度組成
上図：＋イオン 下図：－イオン 単位：meq/l

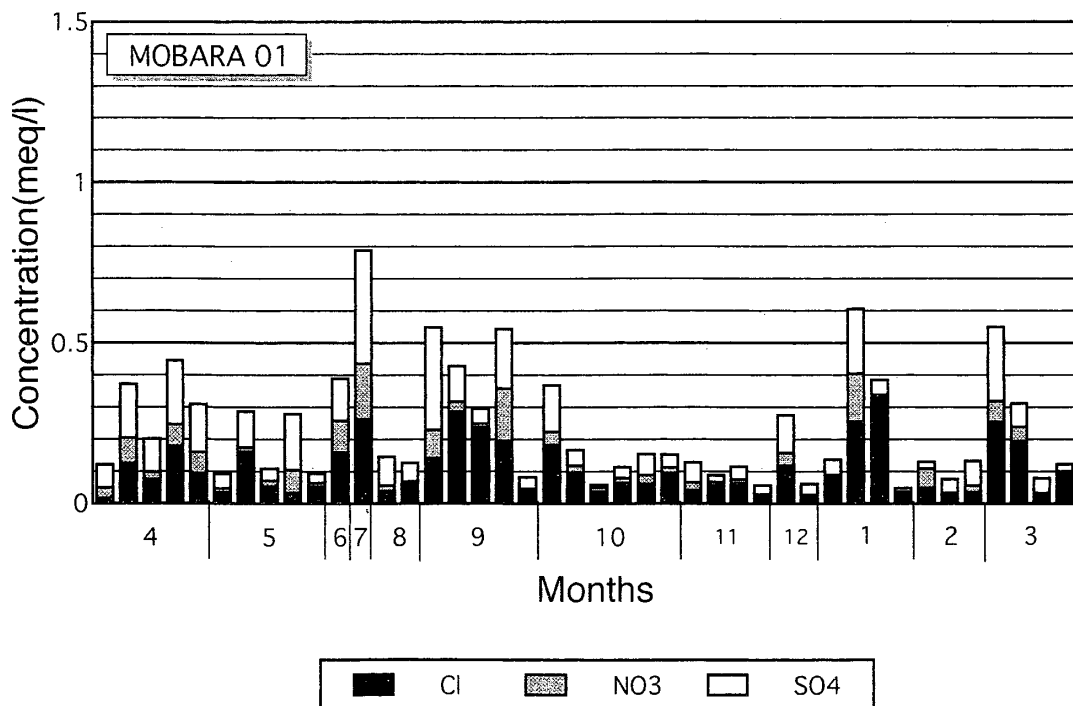
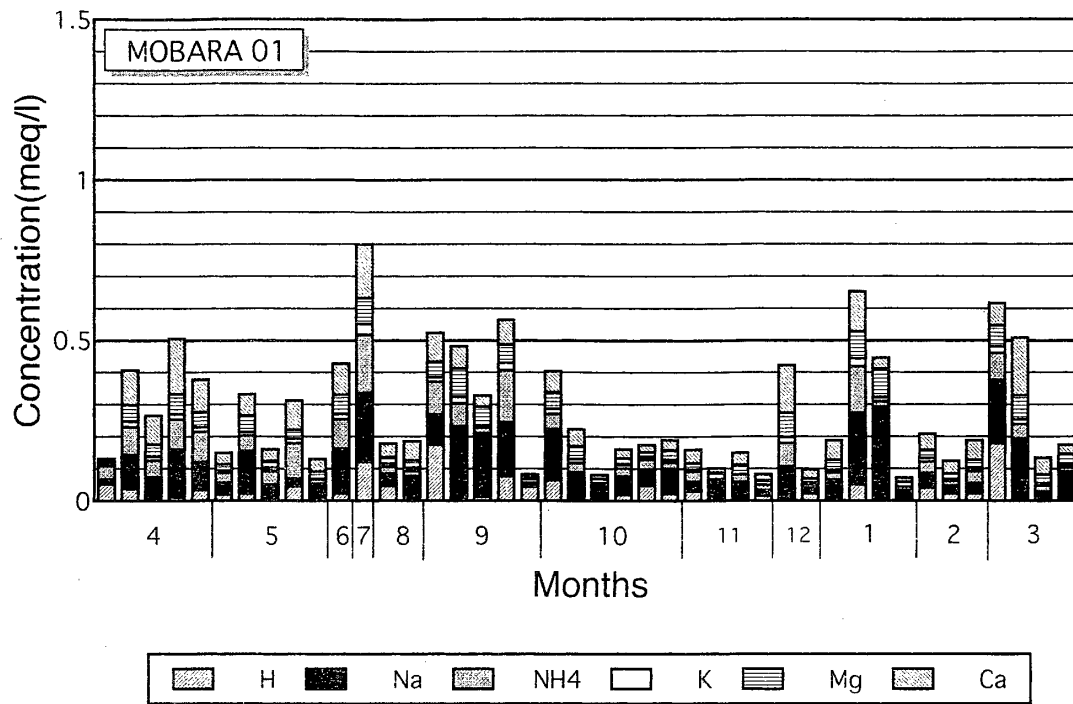


図 5.6 2001年度の茂原における酸性雨のイオン濃度組成
上図：＋イオン 下図：－イオン 単位：meq/l

千葉県北部における酸性雨の地域的特性について (8)

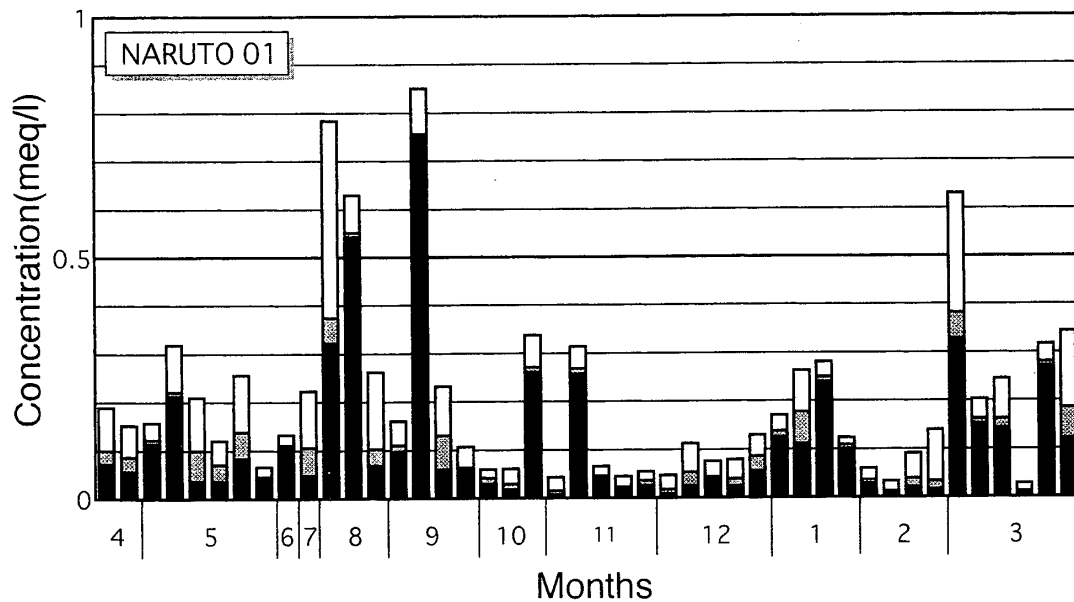
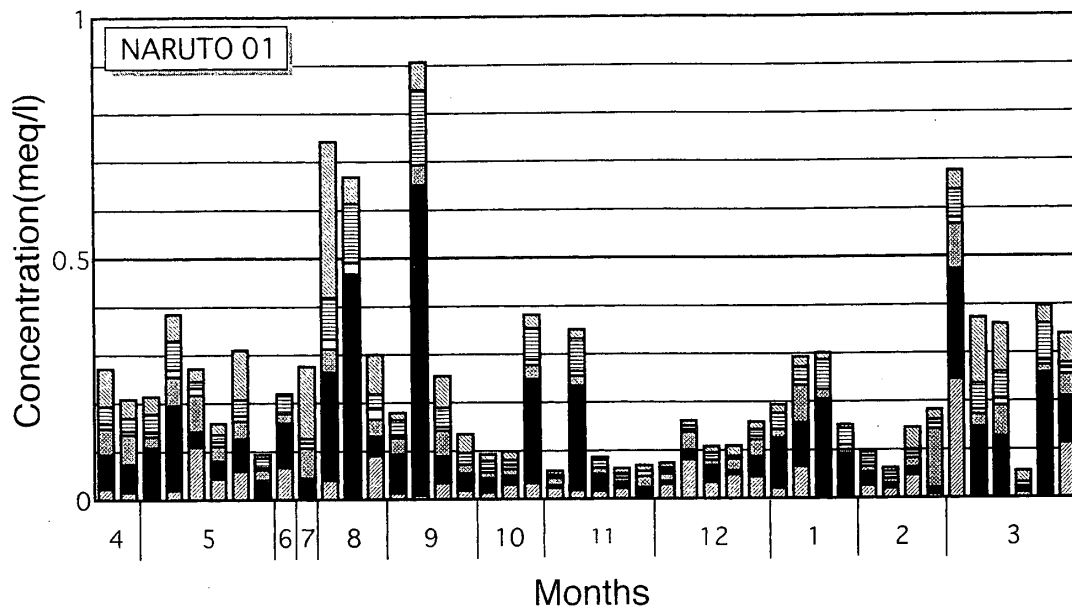


図5.7 2001年度の成東における酸性雨のイオン濃度組成
上図：＋イオン 下図：－イオン 単位：meq/l

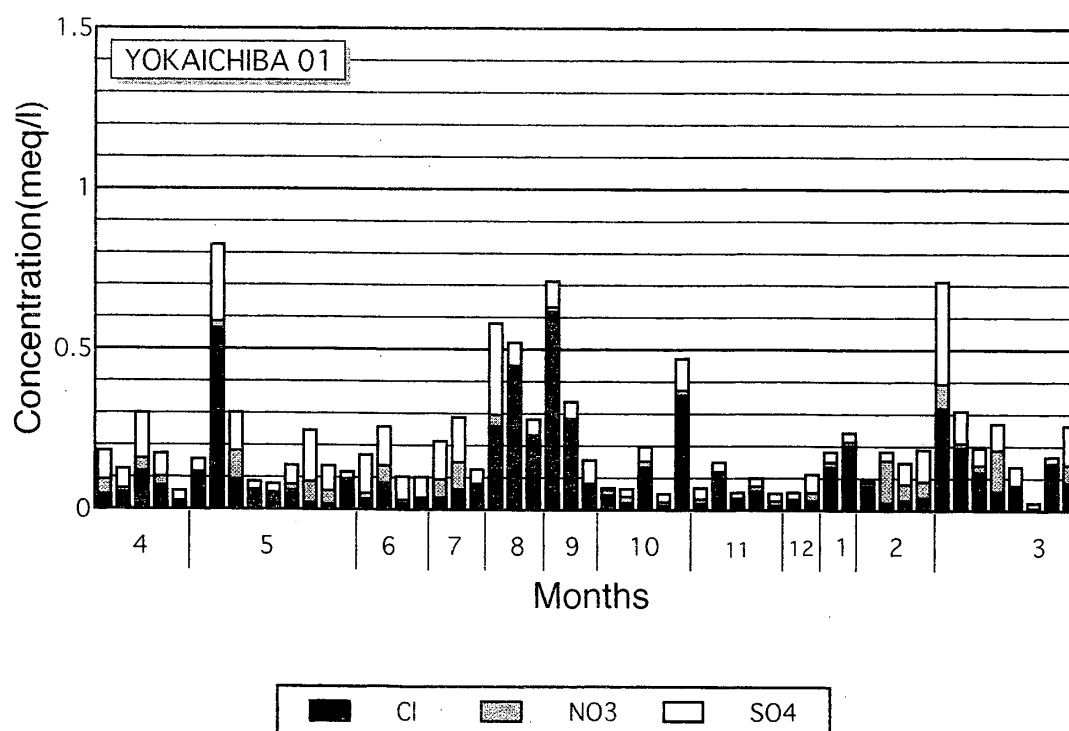
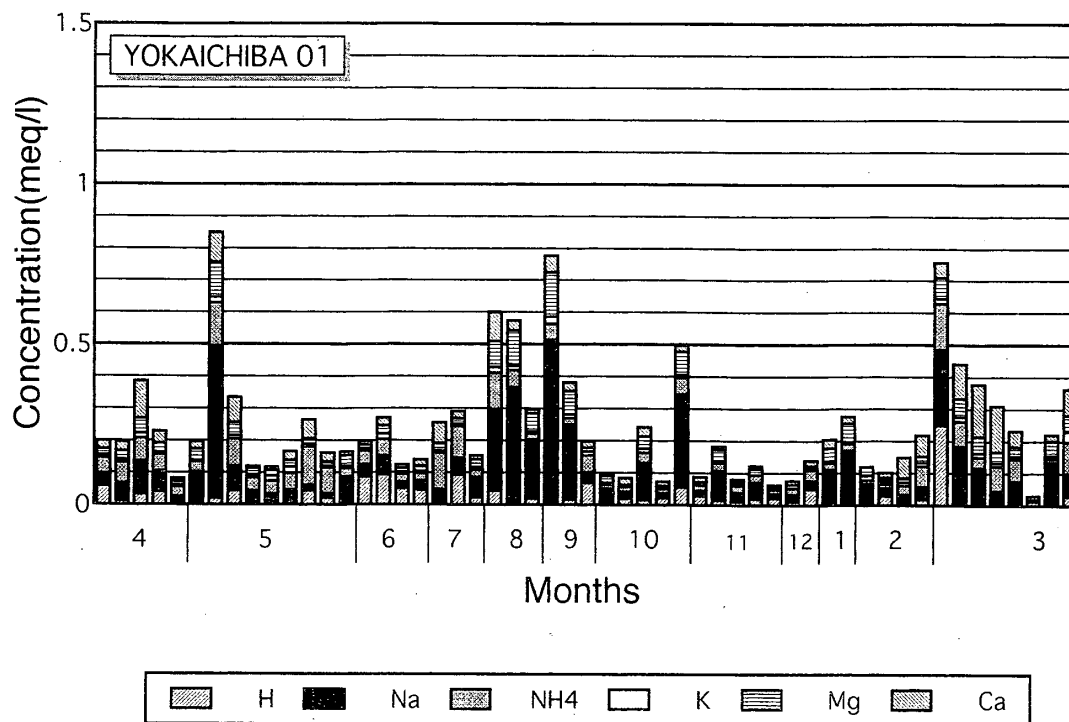


図 5.8 2001年度の八日市場における酸性雨のイオン濃度組成
上図：＋イオン 下図：－イオン 単位：meq/l

千葉県北部における酸性雨の地域的特性について（８）

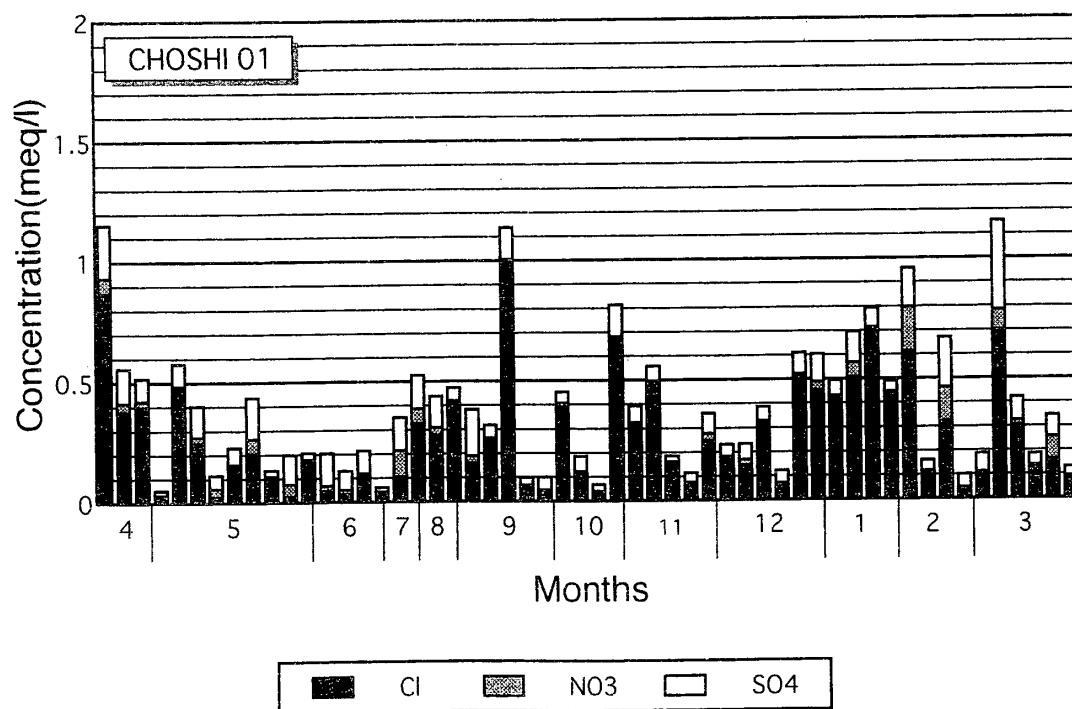
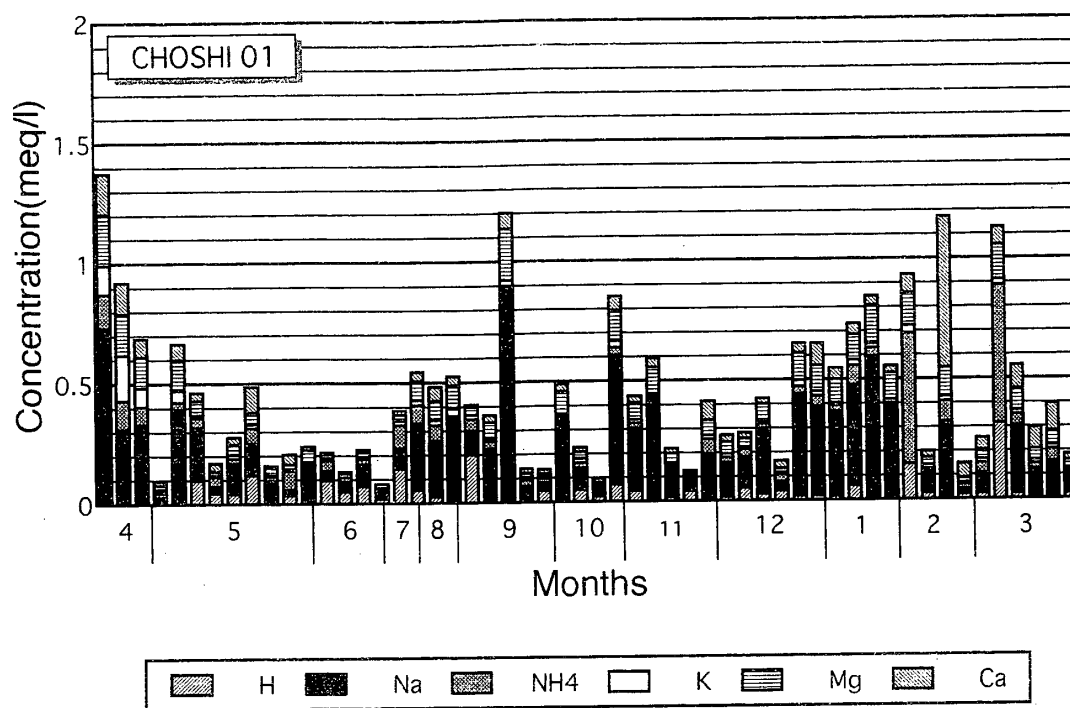


図 5.9 2001年度の銚子における酸性雨のイオン濃度組成
上図：＋イオン 下図：－イオン 単位：meq/l

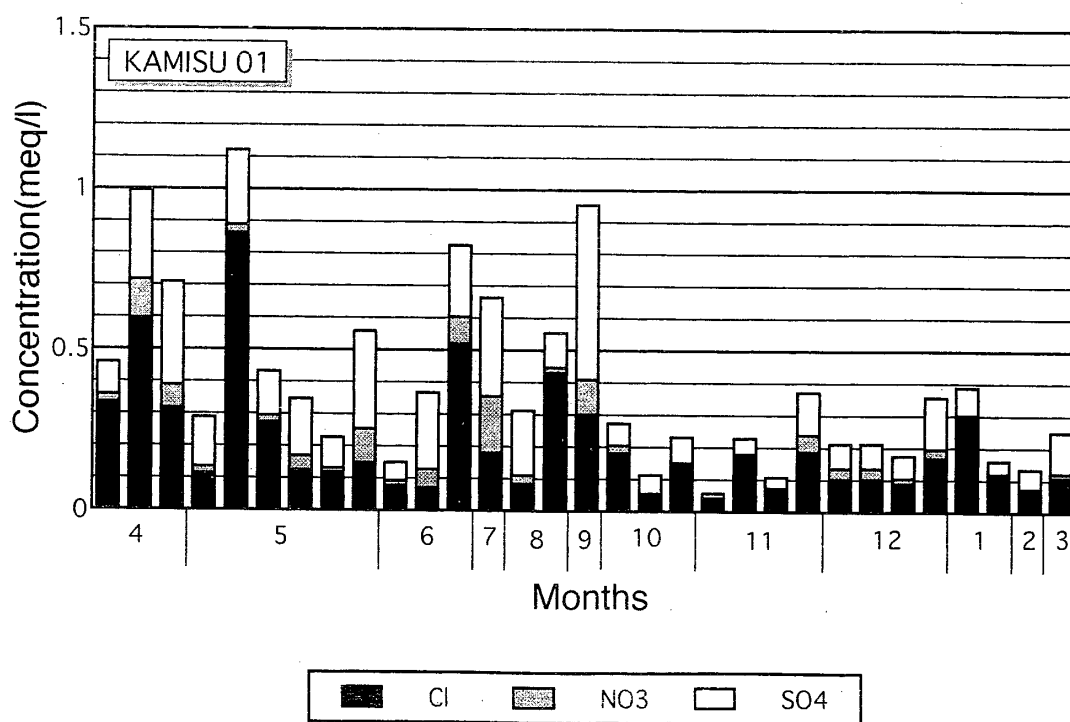
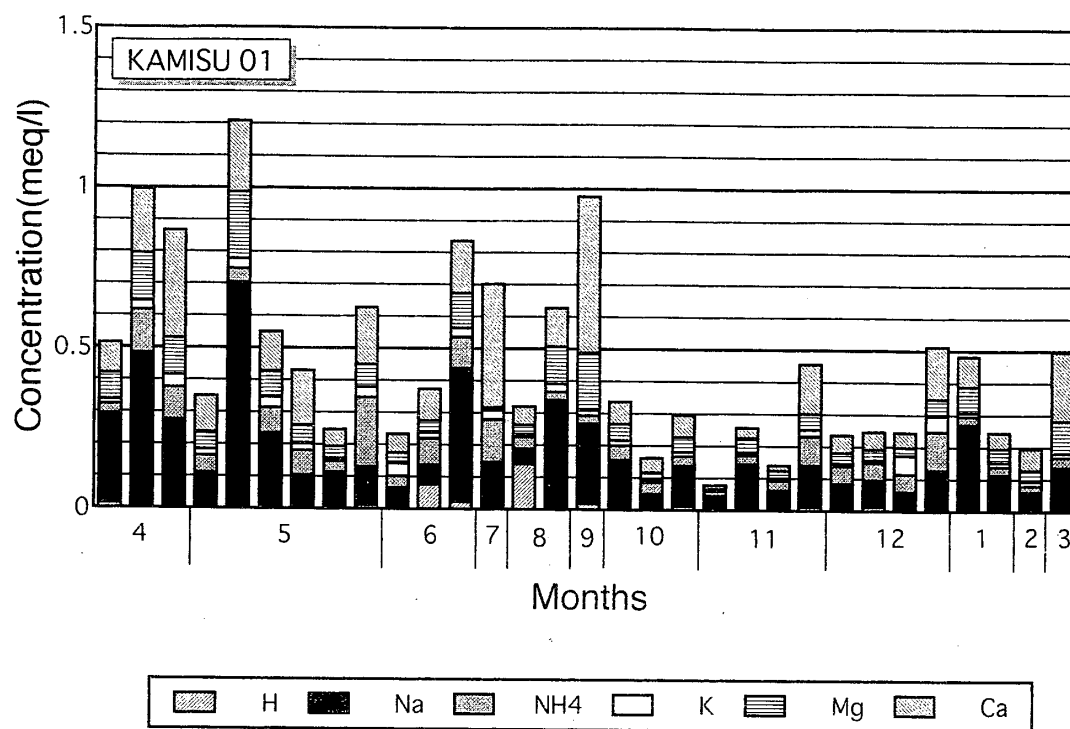


図 5.10 2001年度の神栖における酸性雨のイオン濃度組成
上図：＋イオン 下図：－イオン 単位：meq/l

千葉県北部における酸性雨の地域的特性について（８）

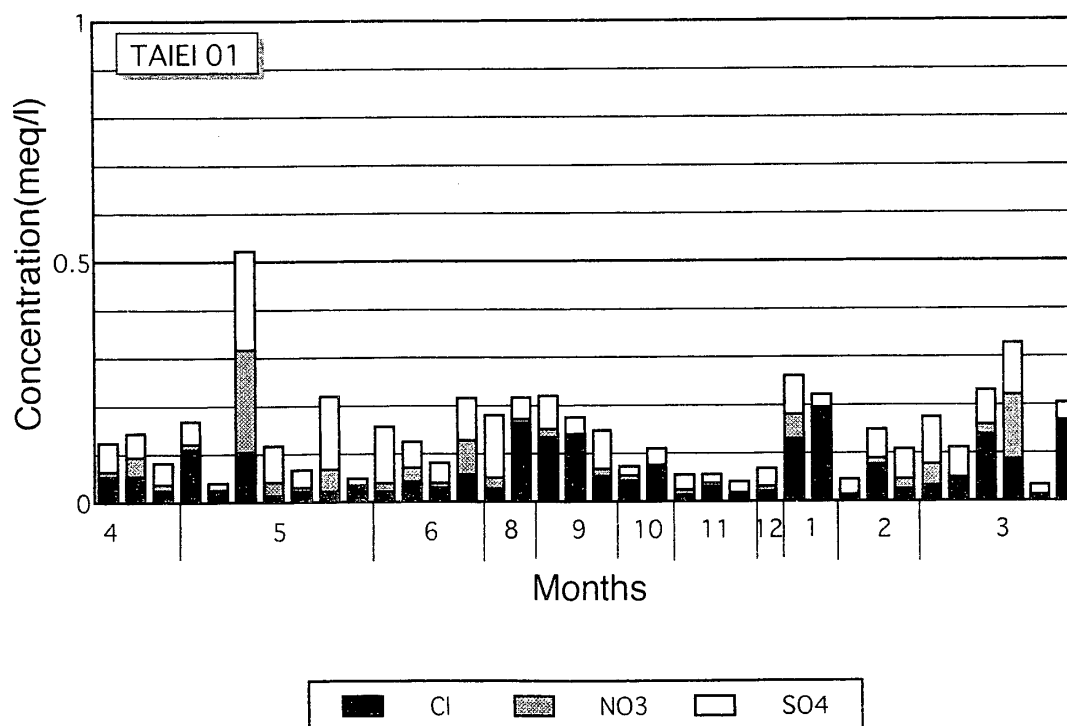
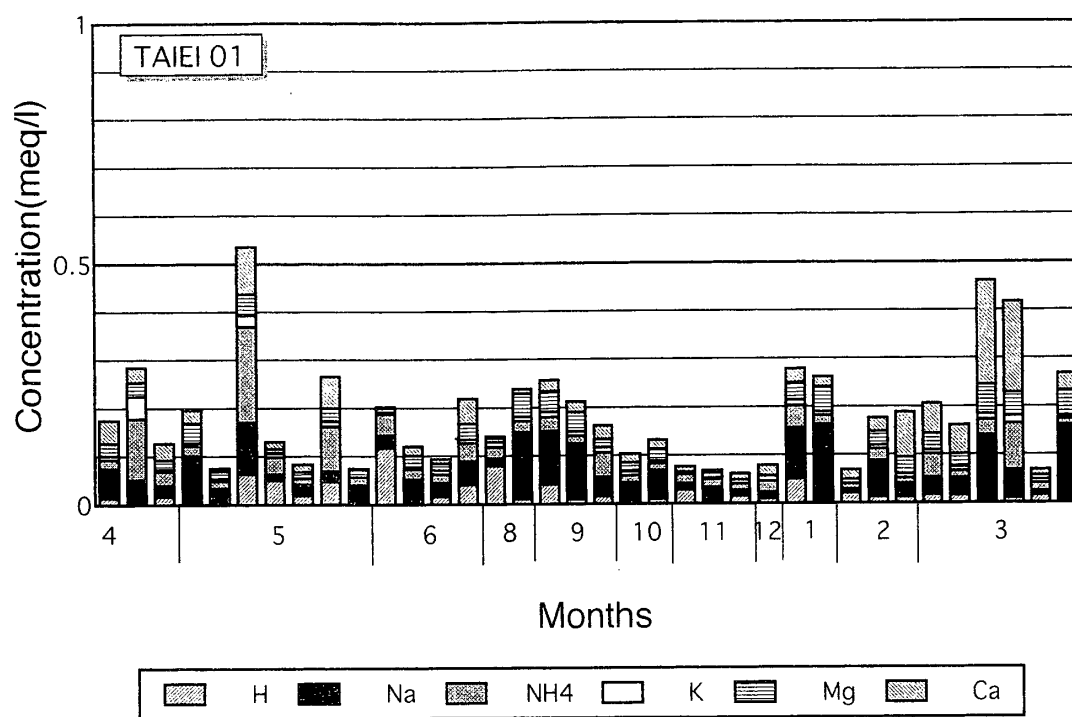


図 5.11 2001年度の大栄町における酸性雨のイオン濃度組成
上図：＋イオン 下図：－イオン 単位：meq/l

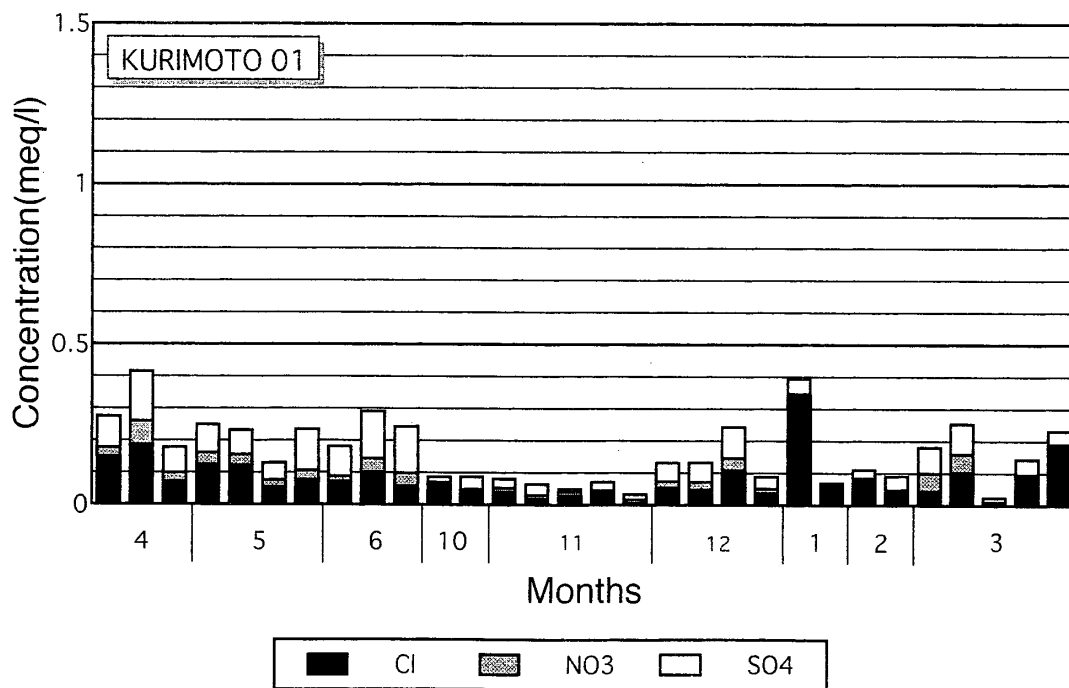
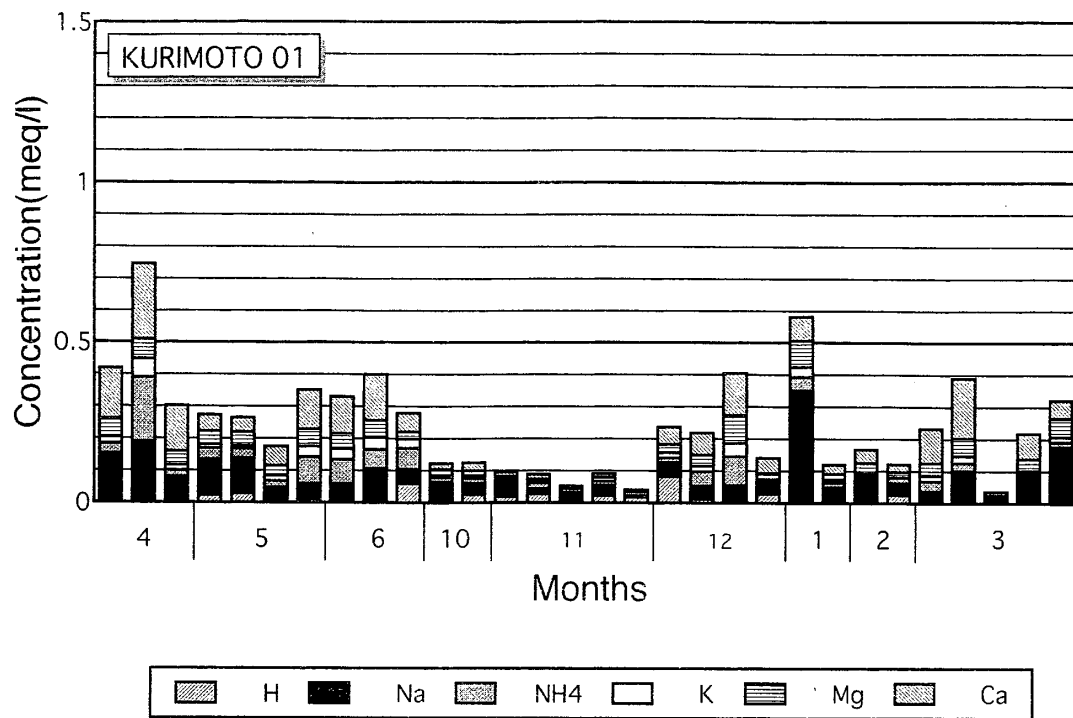


図 5.12 2001年度の栗源における酸性雨のイオン濃度組成
 上図：＋イオン 下図：－イオン 単位：meq/l

千葉県北部における酸性雨の地域的特性について (8)

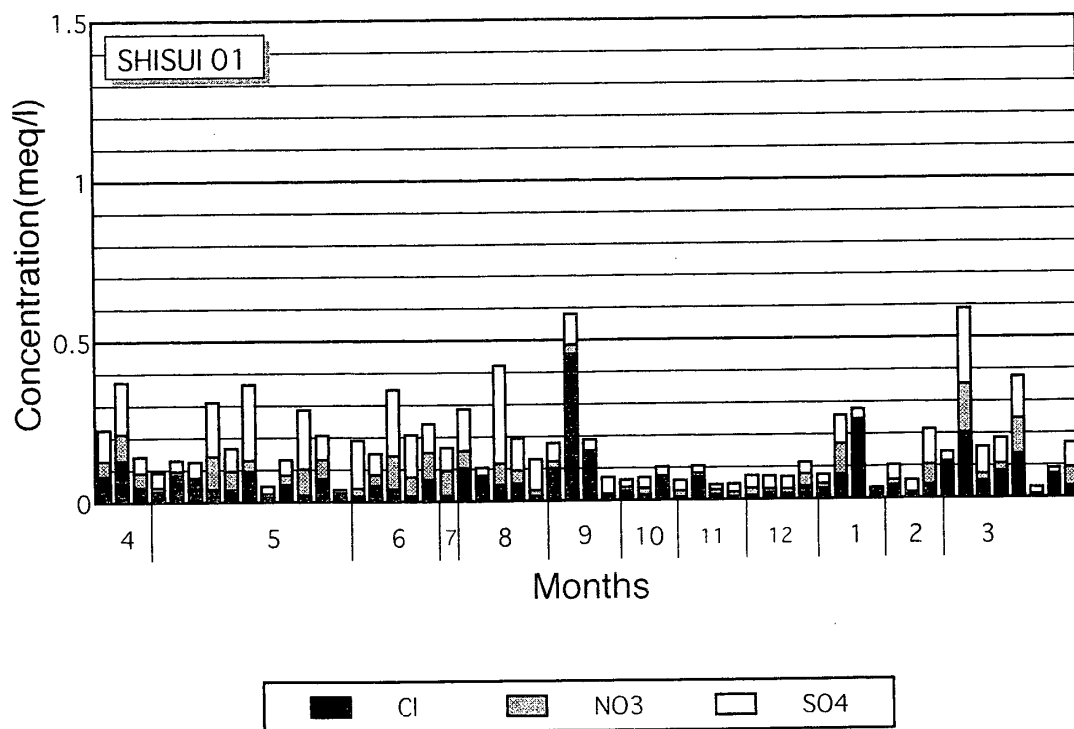
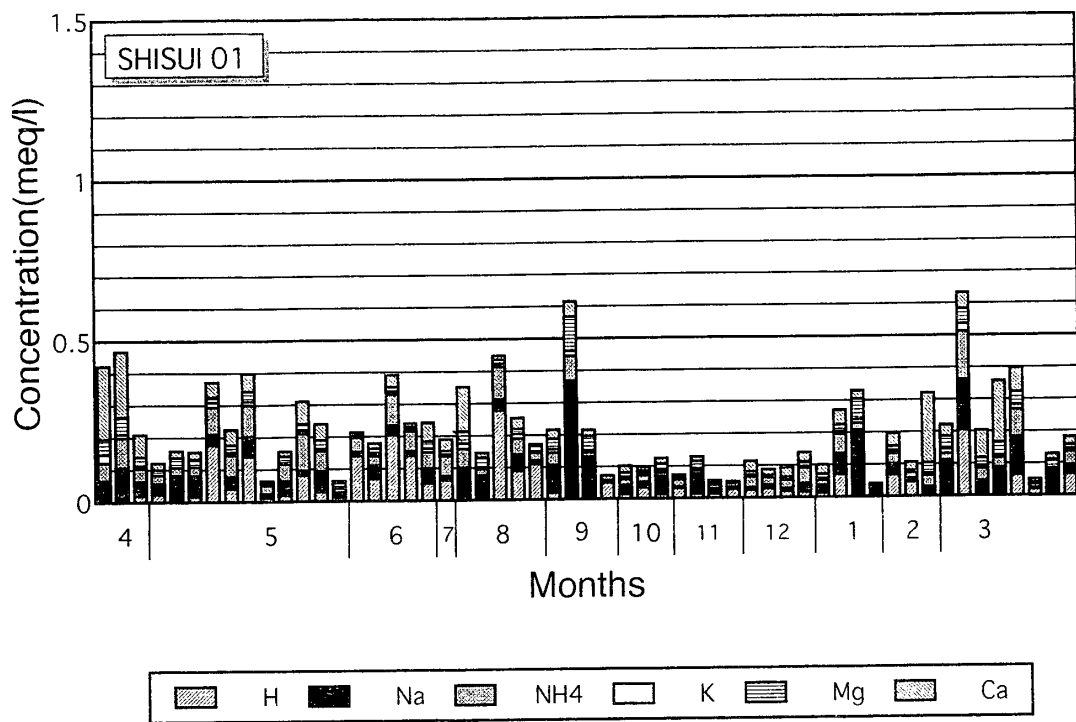


図 5.13 2001年度の酒々井における酸性雨のイオン濃度組成
 上図：＋イオン 下図：－イオン 単位：meq/l

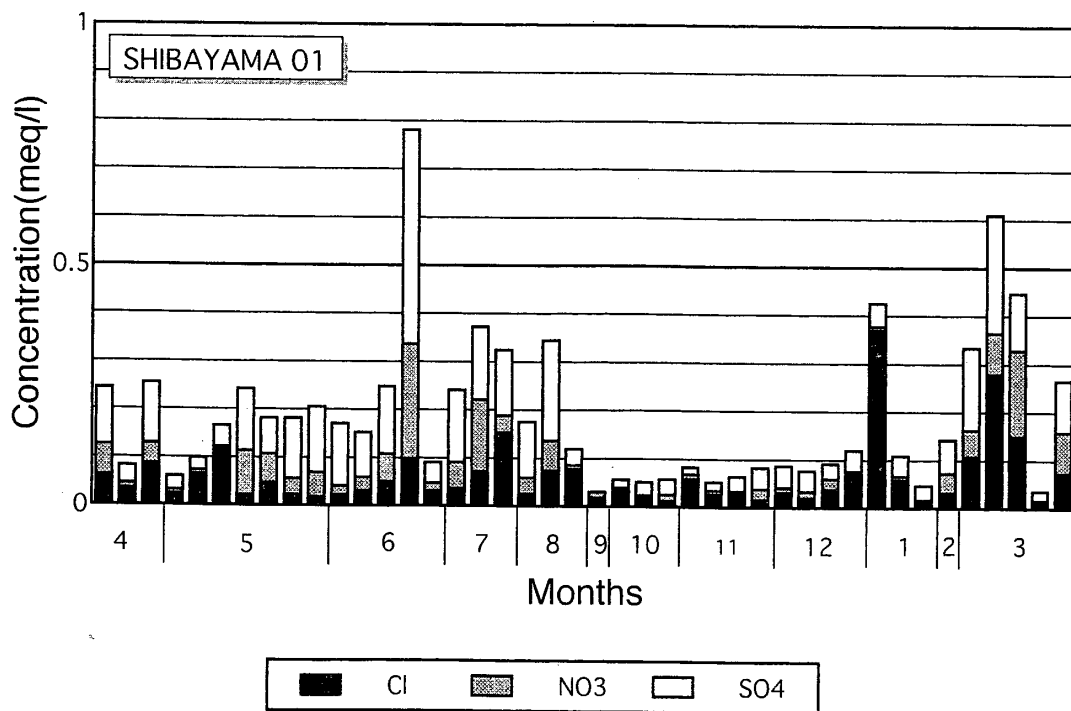
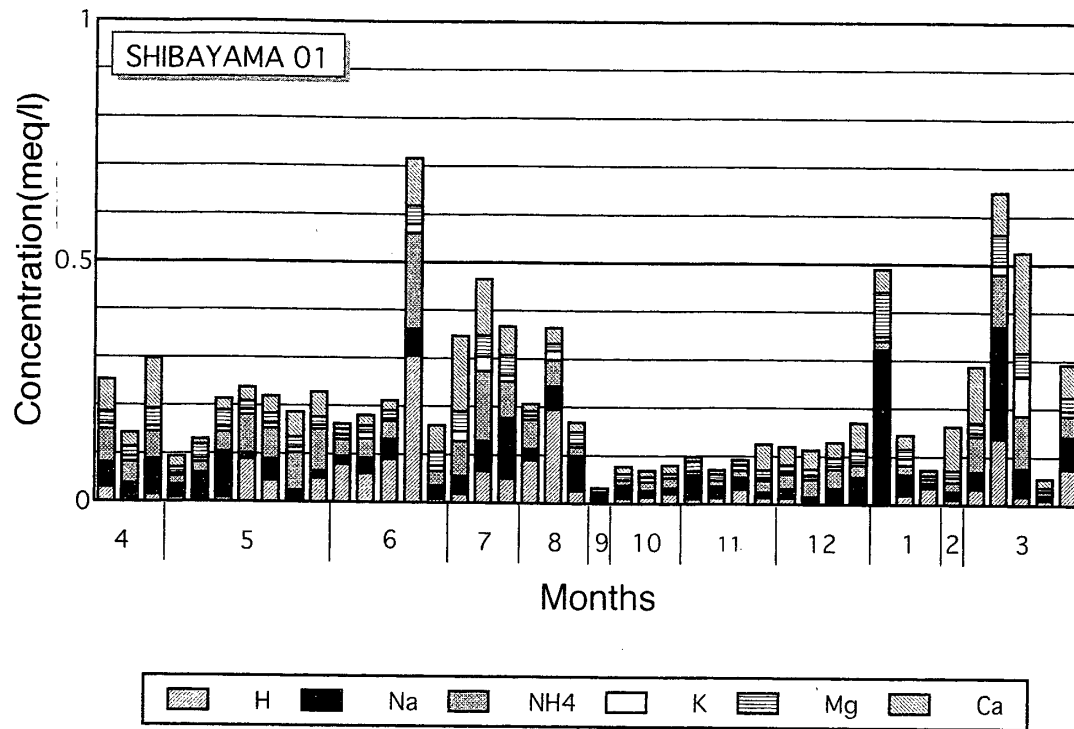


図 5.14 2001年度の芝山における酸性雨のイオン濃度組成
上図：＋イオン 下図：－イオン 単位：meq/l

千葉県北部における酸性雨の地域的特性について(8)

EC：年平均値 $67.60 \mu\text{S}/\text{cm}$

暖候期のイオン濃度は、寒候期の2倍以上に達している。鹿島臨海工業地域に近接しているため、銚子と同様に年間を通じて、 SO_4^{2-} の濃度が NO_3^- の濃度を上回っている。また、 Na^+ 、 Cl^- 、 Mg^{2+} 、 Ca^{2+} 、などの海塩起源と考えられるイオンの濃度が高い(図5.10)。

11) 大栄町 pH：年平均値4.72

EC：年平均値 $35.76 \mu\text{S}/\text{cm}$

内陸部に位置するためであって、5月と3月の一部を除き、 $0.3\text{meq}/\text{l}$ 以下と他の地点に比べて低濃度である。 SO_4^{2-} の濃度は、年間を通じて NO_3^- の濃度を上回っている(図5.11)。

12) 栗源 pH：年平均値4.98

EC：年平均値 $31.86 \mu\text{S}/\text{cm}$

大栄について、イオン濃度が全体的に低い。10月と11月は特に低く、 $0.1\text{meq}/\text{l}$ 以下である(図5.12)。

13) 酒々井 pH：年平均値4.53

EC：年平均値 $44.27 \mu\text{S}/\text{cm}$

$0.5\text{meq}/\text{l}$ 以上の値は、9月と3月に一度ずつ出現したのみである。全体としては、暖候期に高濃度であり、10月から12月はほぼ $0.1\text{meq}/\text{l}$ 以下であった。また、5月から8月には、 H^+ の高濃度が見られる(図5.13)。

14) 芝山 pH：年平均値4.80

EC：年平均値 $43.87 \mu\text{S}/\text{cm}$

酒々井と類似した分布を示し、特に、9月から12月は低濃度の期間であった。酒々井と同様、5月から8月には、高濃度の H^+ が見られた。また、年間を通じて、 SO_4^{2-} の濃度は NO_3^- の濃度を上回っている(図5.14)。

3.3.2 $\text{NO}_3^-/\text{nss-SO}_4^{2-}$ 当量比

低pH化に寄与する NO_3^- と nss-SO_4^{2-} の実態を知

るために、 $\text{NO}_3^-/\text{nss-SO}_4^{2-}$ 当量比(以下N/S比と称する)の暖候期と寒候期のそれぞれの平均値分布図(図6)を作成した。この図によると、暖候期には西部の船橋付近の0.6から東部に向かって減少し、芝山・茂原付近で0.4、北東部の神栖では0.3まで減少している。

寒候期のN/S比では、暖候期と同様に鹿島臨海工業地域に位置する神栖付近に0.3以下の値が見られるが、その他に京葉工業地帯の千葉付近にも0.3以下の地域が分布する。これらの両地域の間を、西部から東部に向かって0.5以上の領域が張り出し、八日市場付近まで達している。

3.3.3 分率酸性度

千葉県北部地域における降水の酸性化に対して、アルカリによる中和がどの程度働いているのかを知るために、Daumほか(1984)のいう分立率酸性度(fractional acidity、 $[\text{H}^+]/([\text{nss-SO}_4^{2-}] + [\text{NO}_3^-])$ 比、全く中和されていない場合が1、すべて中和された場合が0を示す)を計算し、暖候期と寒候期の平均値分布を図7に示した。暖候期の分率酸性度0.1以下の値は、北部の神栖・栗源に至る地域に分布している。0.3以下の地域は、ここを中心とする地域および茂原付近に分布する。一方、分率酸性度0.4以上の地域は、酒々井・佐倉から太平洋岸の成東・銚子に至る地域に分布している。

寒候期には分率酸性度0.3以下の地域は、北部の神栖を中心とした地域に分布する。また、相対的に高い0.4以上の地域は、暖候期とほぼ同様の地域の他に千葉付近にも広がっている。

これらの分率酸性度は、三宅島火山噴火前と比較して、2000年度と同様暖候期・寒候期ともに、高目の値を示している。

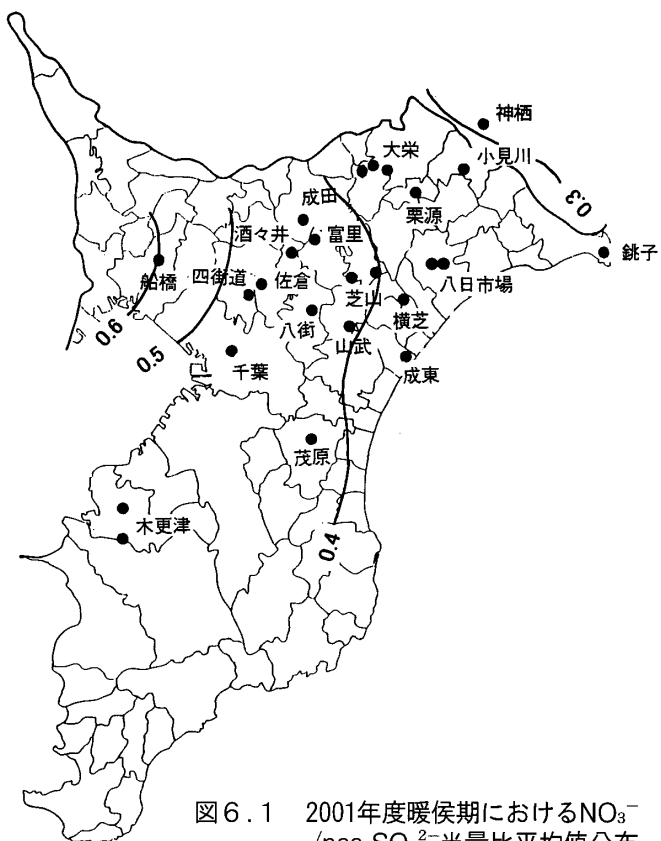


図6.1 2001年度暖侯期における NO_3^- / nss-SO_4^{2-} 当量比平均値分布

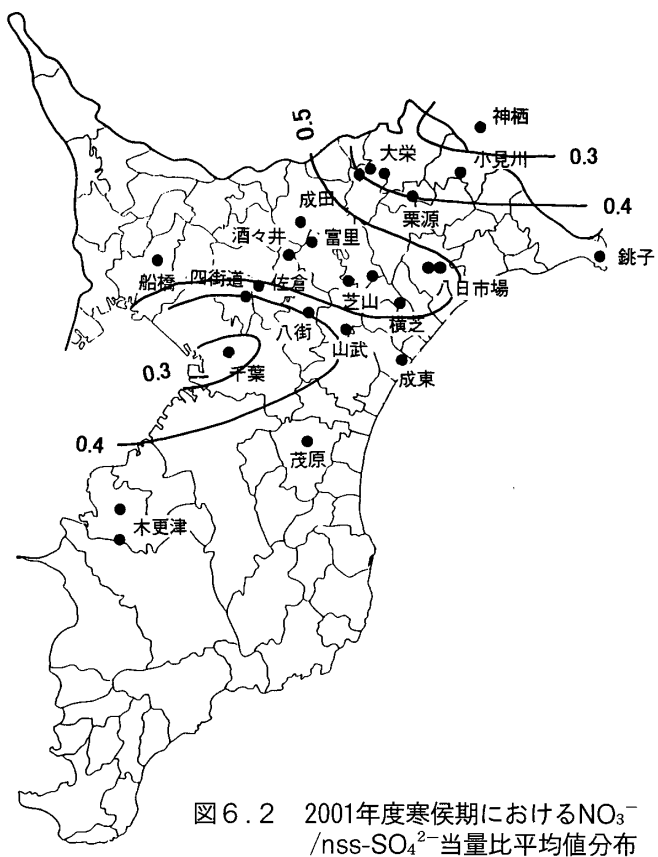


図6.2 2001年度寒侯期における NO_3^- / nss-SO_4^{2-} 当量比平均値分布

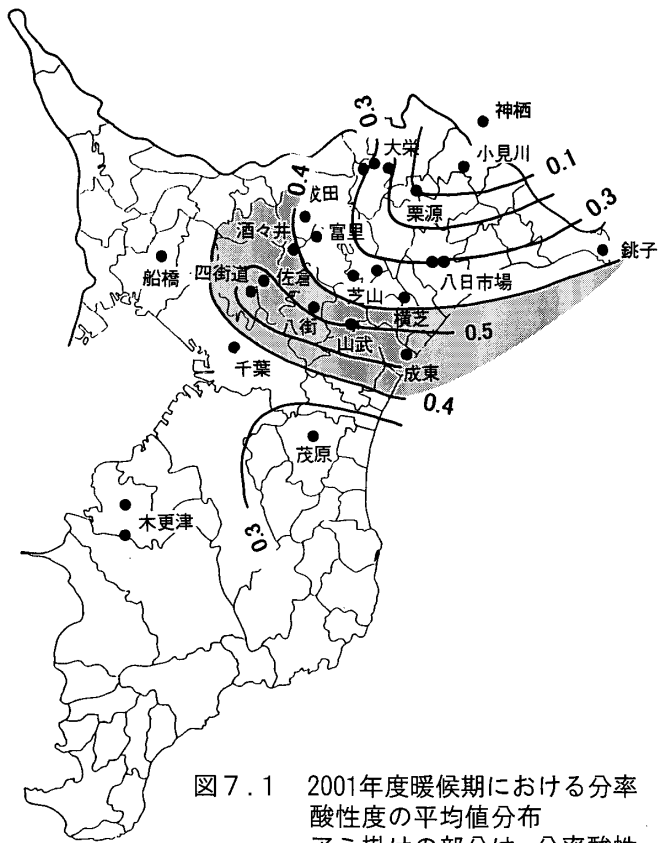


図 7.1 2001年度暖候期における分率酸性度の平均値分布
アミ掛けの部分は、分率酸性度0.4以上の領域を示す

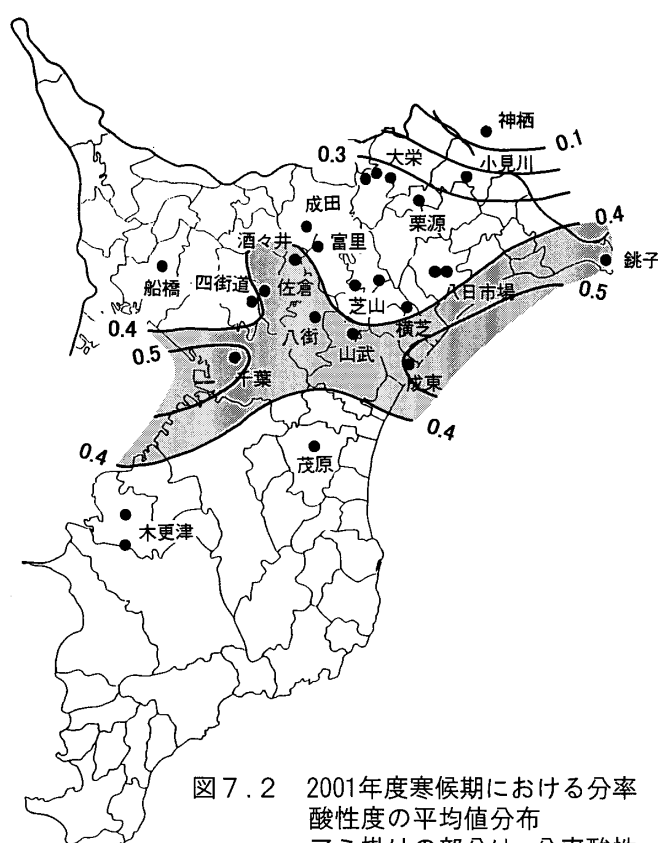


図 7.2 2001年度寒候期における分率酸性度の平均値分布
アミ掛けの部分は、分率酸性度0.4以上の領域を示す

千葉県北部における酸性雨の地域的特性について（８）

次ぎに、pHと分率酸性度（A）との関係をさらに詳しく調べるために、佐倉の例を図8に示した。図8.1によれば、暖候期における両者間には負の相関（相関係数-0.503）が認められ、その関係は次式で示される。

$$\text{pH} = -0.957A + 4.901$$

この式によると、暖候期には分率酸性度0.1の時にpH4.805、同0.5の時にpH4.423となっている。

一方、寒候期の両者間の関係についても、図8.2

に示すような負の相関（相関係数 -0.382）が得られ、その関係は次式で示される。

$$\text{pH} = -0.545A + 4.869$$

4 まとめ

2001年度に千葉県北部地域の20地点において、一降水毎の酸性雨観測を実施した。

その結果から得られたおもな知見は、次の通りである。

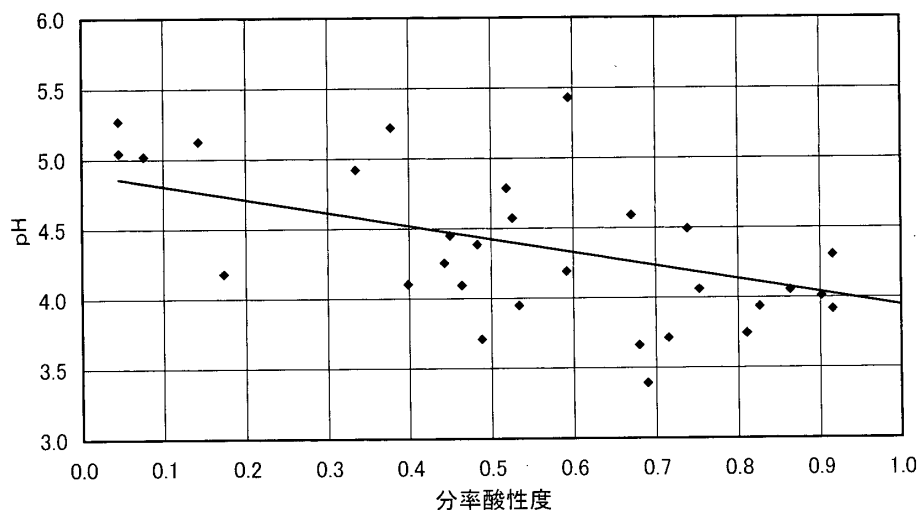


図8.1 2001年度暖候期におけるpHと分率酸性度
 $([\text{H}^+] / ([\text{nss-SO}_4^{2-}] + [\text{NO}_3^-]))$ との関係

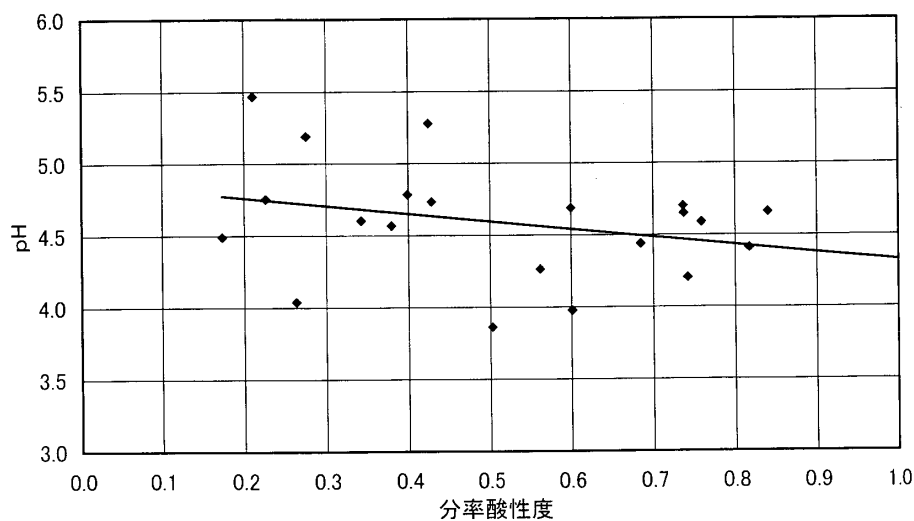


図8.2 2001年度寒候期におけるpHと分率酸性度
 $([\text{H}^+] / ([\text{nss-SO}_4^{2-}] + [\text{NO}_3^-]))$ との関係

1. 千葉県北部地域の $\text{NO}_3^-/\text{nss-SO}_4^{2-}$ 当量比 (N/S比) は、暖候期には西部から東部に向かって減少する傾向を示す。
2. 三宅島火山からの大量の SO_2 放出の影響が続いていたため、2000年度と同様、全地域で暖候期・寒候期ともに、pHおよびN/S比は例年よりも低目の値、逆に分率酸性度は高目の値を示した。
3. 暖候期のpH分布と分率酸性度 ($[\text{H}^+]/([\text{nss-SO}_4^{2-}] + [\text{NO}_3^-])$) との間には負の相関が見られる。佐倉の暖候期のpHと分率酸性度 (A) との関係は、次式で示される。

$$\text{pH} = -0.957A + 4.901 \quad r = -0.503$$

また、寒候期のpHと分率酸性度 (A) との関係は、次式で示される。

$$\text{pH} = -0.545A + 4.869 \quad r = -0.382$$

謝 辞

酸性雨観測に当たり、ご協力頂いた本研究所環境モニター・地域研究員の方々、ならびに本学学生諸君に対し、深く感謝申し上げます。

参考文献

- Daum, P.H., Kelly, T.J., Schwartz, S.E. and Newman, L. (1984) : Measurements of the chemical composition of stratiform clouds. *Atmospheric Environment*, 18, 2671-2684.
- 中村圭三 (1993) : 大学周辺の環境を題材とした教育システムの検討. 環境情報研究, No.1, 1~13.
- 中村圭三 (1994) : 1993年暖候期における佐倉およびその周辺の酸性雨について. 環境情報研究, No.2, 5~24.
- 中村圭三 (1995) : 千葉県北部における酸性雨の地域的特性について -1994年度観測結果-. 環境情報研究, No.3, 1~19.
- 中村圭三 (1996) : 千葉県北部の酸性降水に見られる地域的特性について. 第37回大気環境学会年会講演要旨集, pp318.
- 中村圭三 (1997) : 千葉県北部における酸性雨の地域的特性について (2) -1995年度観測結果-. 環境情報研究, No.5, 23~41.
- 中村圭三 (1998) : 千葉県北部における酸性雨の地域的特性について (3) -1996年度観測結果-. 環境情報研究, No.6, 25~51.
- 中村圭三 (1999) : 千葉県北部における酸性雨の地域的特性について (4) -1997年度観測結果-. 環境情報研究, No.7, 1~26.
- 中村圭三 (2000) : 千葉県北部における酸性雨の地域的特性について (5) -1998年度観測結果-. 環境情報研究, No.8, 37~59.
- 中村圭三・立澤誘一 (2001) : 千葉県北部における酸性雨の地域的特性について (6) -1999年度観測結果-. 環境情報研究, No.9, 55~78.
- 中村圭三 (2002) : 三宅島火山ガスの佐倉の酸性降水におよぼす影響について. 環境情報研究, No.10, 9~23.
- 中村圭三・立澤誘一 (2002) : 千葉県北部における酸性雨の地域的特性について (7) -2000年度観測結果-. 環境情報研究, No.10, 25~46.

ABSTRACT

Regional Characteristics of Acid Rain in the Northern Part of Chiba Prefecture: Part 8 on the Results of the observation from April 2001 to March 2002

Keizo NAKAMURA and Yuichi TATSUZAWA

In order to clarify the regional characteristics of acid rain in Chiba Prefecture, the data of precipitation which were obtained during the period from April 2001 to March 2002 with the aid of the environmental monitoring volunteers of the Institute of Environmental Studies of Keiai University have been analyzed.

The results of the analyses are summarized as follows:

- 1) $\text{NO}_3^-/\text{nss-SO}_4^{2-}$ ratio (N/S ratio) of the Northern Region in Chiba Prefecture shows the tendency which decreases for the east from the west in warm period.
- 2) The value of pH and N/S ratio received the effect of the large SO_2 emission from the Miyakejima volcano.
- 3) The pH distribution and fractional acidity $[\text{H}^+]/([\text{nss-SO}_4^{2-}] + [\text{NO}_3^-])$ distribution in the warm period show the very good correlation. The relationship between pH and fractional acidity (A) in warm period in Sakura is shown in the following equation.

$$\text{pH} = -0.957A + 4.901 \quad r = -0.503$$

And, the relationship between pH and fractional acidity (A) in cooling season is shown in the following equation.

$$\text{pH} = -0.545A + 4.869 \quad r = -0.382$$